

Rec'd PCT 29 MAR 2005  
PCT/JP03/12267

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

25.09.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日      2 0 0 2 年 1 0 月    8 日  
Date of Application:

出 願 番 号      特 願 2 0 0 2 - 2 9 5 0 4 2  
Application Number:  
[ST. 10/C]:      [ J P 2 0 0 2 - 2 9 5 0 4 2 ]

REC'D 13 NOV 2003

WIPO

PCT

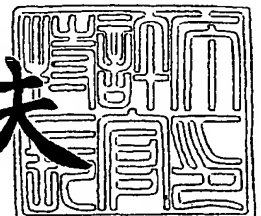
出 願 人      株式会社ブリヂストン  
Applicant(s):

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 3 年 1 0 月 3 1 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願

【整理番号】 P233026

【提出日】 平成14年10月 8日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 C04B 35/83

【発明の名称】 高熱伝導率複合材および高熱伝導率複合材の製造方法

【請求項の数】 4

【発明者】

【住所又は居所】 東京都小平市小川東町 3-1-1 株式会社 ブリヂストン 技術センター内

【氏名】 菊池 正美

【発明者】

【住所又は居所】 東京都小平市小川東町 3-1-1 株式会社 ブリヂストン 技術センター内

【氏名】 原田 伊紀

【発明者】

【住所又は居所】 東京都小平市小川東町 3-1-1 株式会社 ブリヂストン 技術センター内

【氏名】 水野 恵一郎

【発明者】

【住所又は居所】 東京都小平市小川東町 3-1-1 株式会社 ブリヂストン 技術センター内

【氏名】 田沼 逸夫

【発明者】

【住所又は居所】 東京都小平市小川東町 3-1-1 株式会社 ブリヂストン 技術センター内

【氏名】 小川 雅男

## 【特許出願人】

【識別番号】 000005278

【氏名又は名称】 株式会社 ブリヂストン

## 【代理人】

【識別番号】 100072051

【弁理士】

【氏名又は名称】 杉村 興作

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100059258

【弁理士】

【氏名又は名称】 杉村 暁秀

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 074997

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9712186

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高熱伝導率複合材および高熱伝導率複合材の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 金属材料中に複数のカーボンナノチューブを配向させるとともに、配向方向に直交する所定の二平面で区切られる両端間の一端から他端までこれらのカーボンナノチューブが互いに接触し合って繋がったカーボンナノチューブ連続体を有してなる高熱伝導複合材。

【請求項 2】 金属材料とカーボンナノチューブとの混合割合が、金属材料 100 重量部に対してカーボンナノチューブ 0.1～5 重量部である請求項 1 に記載の高熱伝導複合材。

【請求項 3】 前記金属材料は Al、Cu、Mg からなる群から選ばれた金属又は前記群から選ばれた金属を含む合金の一種類又は二種類以上よりなる請求項 1 もしくは 2 に記載の高熱伝導複合材。

【請求項 4】 請求項 1～3 のいずれかに記載の高熱伝導率複合材の製造方法であって、熔融した前記金属材料中にカーボンナノチューブが分散された熔融体を流動させ、熔融体の流動過程でこれを冷却して固化させることによりカーボンナノチューブを配向させる高熱伝導率複合材の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、高熱伝導率複合材及びその製造方法に関し、特に、電気回路保護用の散熱板、熱交換器やヒートポンプ等の熱的機械、あるいは、車両用ブレーキやホイール等の熱放散性の要求が高い部品に用いられる高熱伝導率複合材及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来、熱交換、熱伝達の現象を伴う熱的機械又は散熱用の汎用熱伝導材としては、主に鋳鉄、ステンレス鋼、銅及び銅合金、アルミニウム及びアルミニウム合金、ニッケル及びニッケル合金、チタン及びチタン合金、ジルコニウム合金等が

使用されていて、特に、高熱伝導率が要求される熱交換器等の熱的機械には、常温から高温までの温度範囲にわたって熱伝導率が最も高い銅やアルミニウム等が使用されている。(例えば、非特許文献1 参照)

#### 【0003】

しかし、昨今の省エネルギーに対する要望の高まりの中、より高い熱伝導率あるいは熱効率を有する熱的機械が求められており、銅やアルミニウム等に比べて、より高い熱伝導率を有する汎用熱伝導材を開発する必要がある。また、車両用ブレーキやホイール等の部品においては、ブレーキの性能を向上させあるいは高速走行下でのタイヤの温度上昇を抑制してタイヤの耐久性を確保するため、これらの部品におけるのさらなる放熱性の改良が望まれている。

#### 【0004】

##### 【非特許文献1】

落合安太郎著、「熱交換器」、日刊工業新聞社、昭和41年6月、p. 73  
-75

#### 【0005】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、このような問題点に鑑みてなされたものであり、銅やアルミニウム等に対比しても格段に高い熱伝導率を有する材料およびその製造方法を提供することにある。

#### 【0006】

##### 【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するため、本発明はなされたものであり、その要旨構成ならびに作用を以下に示す。

#### 【0007】

請求項1に記載の高熱伝導複合材は、金属材料中に複数のカーボンナノチューブを配向させるとともに、配向方向に直交する所定の二平面で区切られる両端間の一端から他端までこれらのカーボンナノチューブが互いに接触し合って繋がったカーボンナノチューブ連続体を有してなるものである。

#### 【0008】

カーボンナノチューブ単体の熱伝導率はその測定方法がまだ見つかっていないため明らかではないが、熱伝導率が極めて高いことがその結晶構造から理論的に推定されている。本発明の高熱伝導複合材は、金属材料中に配向したカーボンナノチューブが互いに接触し合って繋がったカーボンナノチューブ連続体を有しているので、対象の部品に、連続体の一方の端が高温側に接続され他方の端が低温側に接続されるよう高熱伝導複合材を配設することにより、この部品の熱放散性を向上させることができる。

#### 【0009】

請求項2に記載の高熱伝導複合材は、請求項1に記載するところにおいて、金属材料とカーボンナノチューブとの混合割合が、金属材料100重量部に対してカーボンナノチューブ0.1～5重量部であるものである。

#### 【0010】

この高熱伝導複合材に、従来知られている高熱伝導率材料であるアルミニウムより格段に高い熱伝導率、たとえば、約240W/mK以上の熱伝導率を付与するためには、金属材料100重量部に対してカーボンナノチューブ0.1重量部以上含ませる必要がある。しかし、これが5重量部を越えると、カーボンナノチューブが十分分散せず、カーボンナノチューブの固結部分や空気巻き込みによる空洞部分が発生し好ましくない。

#### 【0011】

請求項3に記載の高熱伝導複合材は、請求項1もしくは2に記載するところにおいて、前記金属材料はAl、Cu、Mgからなる群から選ばれた金属又は前記群から選ばれた金属を含む合金の一種類又は二種類以上よりなるものである。

#### 【0012】

前記金属材料も高熱伝導複合材の熱伝導に少なからず寄与するので、この金属材料の熱伝導率も高いことが好ましい。本発明の高熱伝導複合材は、前記金属材料にAl、Cu、Mgのいずれかを含んでいるので、高熱伝導複合材に高い熱伝導率を与えることができる。さらに、これらの金属は、融点が低いのでカーボンナノチューブを分散させる熔融体を低温で形成することができ、また、柔らかく延性が高いので加工性に富んでいて、これらの点でも製造上好ましい。

## 【0013】

請求項4に記載の高熱伝導率複合材の製造方法は、請求項1～3のいずれかに記載の高熱伝導率複合材の製造方法であって、熔融した前記金属材料中にカーボンナノチューブが分散された熔融体を流動させ、熔融体の流動過程でこれを冷却して固化させることによりカーボンナノチューブを配向させるものである。

## 【0014】

本発明の高熱伝導率複合材の製造方法は、前記流動過程で熔融体を冷却して固化させるので、カーボンナノチューブを容易に配向させることができるとともにこれを配向させたあとこの配向が崩れるの防止することができる。

## 【0015】

## 【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施形態について図1ないし図4に基づいて説明する。図1は、この実施形態の高熱伝導率複合材よりなる棒状部材1を示す略線斜視図である。図2は、カーボンナノチューブ2同士が接触する部分を示す略線側面図である。

## 【0016】

高熱伝導率複合材よりなる棒状部材1には、アルミニウム母材4中にその軸線方向に沿って配向された多数のカーボンナノチューブ2を有し、これらのカーボンナノチューブは互いに繋がって、棒状部材1の端面6A、6Bの両方に開口するとともに一方の端面6Aから他方の端面6Bまで連続して延在する多数のカーボンナノチューブ連続体3を形成する。互いに隣接するカーボンナノチューブ2は、例えば図2に示すように、L1、L2もしくはL3で外周面同士を接触させているので高熱伝導率の物質を直列に接続した熱伝達経路を構成することができる。

## 【0017】

ここで、棒状部材1の太さは0.1mm～2.0mm程度であり、その長さは必要に応じて自由に選択することができる。また、これに用いるカーボンナノチューブのサイズは、長さが100～20000nm、直径が20～300nm程度である。母材としては、アルミニウムの他、銅やマグネシウムなどを用いるこ

とができる。本実施の形態においては、カーボンナノチューブの混合割合は、アルミニウム 100 重量部に対して 0.1～5 重量部としていて、その結果得られる熱伝導率は 300～12000 W/mK でありこれは通常のアルミニウムの熱伝導率 240 W/mK に対して最高で 50 倍高いものとすることができる。

#### 【0018】

図 3 は、この実施形態の高熱伝導率複合材よりなる曲り棒状の部材 11 を示す略線斜視図である。この部材 11 は曲線に沿って延在するが、棒状部材 1 と同様、アルミニウム母材 4 中にその延在方向に沿って配向された多数のカーボンナノチューブ 2 を有し、これらのカーボンナノチューブ 2 は互いに繋がって、曲り棒状の部材 11 の端面 16 A、16 B の両方に開口するとともに一方の端面 16 A から他方の端面 16 B まで連続して延在する多数のカーボンナノチューブ連続体 13 を形成する。

#### 【0019】

図 1 に示される高熱伝導率複合材よりなる部材 1 を製造する方法について、図 4 を参照して説明する。容器 25 の中に、溶融したアルミニウムの中にカーボンナノチューブ 2 を混合分散させた溶融体 21 を準備するが、この状態ではカーボンナノチューブ 2 は配向していない。次いで、容器 25 の出口に設けたバルブ 26 を開け、この溶融体 21 を所定の流速でこの容器 25 から流出させる。

#### 【0020】

流出した溶融体 21 は、図において反時計回りに回転する冷却ドラム 27 に設けられた溝 28 に注入される。このとき、溶融体 21 の流出する流速より冷却ドラム 27 の周速を速く設定してあり、溶融体 21 は冷却ドラム 27 の溝 28 によって引き出されるので、その引き出しによってカーボンナノチューブ 2 をその流れの方向に配向させることができる。そして、この溶融体 21 は冷却ドラム 27 の溝から排出される前に、冷却ドラム 27 の冷却作用によって半固化状態となり、この半固化状態ではカーボンナノチューブ 2 の配向が元に戻ることはない。固定された固化体 23 となる。冷却ドラム 27 から排出されたあとさらに冷却され固化された固化体 23 は、圧延ロール 29 によって断面形状を円形に成形されたのちカッタ 30 で所定の長さに切断されて、棒状部材 1 が形成されることになる。



**【0021】**

以上の製造方法において、溶融体 21 が流動する過程で、カーボンナノチューブ 2 はその流動の方向に配列される。ここで、溶融体 21 の流出速度より冷却ドラム 27 の周速を速くすることによって、カーボンナノチューブ 2 を配向させることができるとともに部材 1 を連続的に形成することができる。

**【0022】**

また、曲り棒状の部材 11 を製造するには、円筒状の鑄型 28 の代りに、部材 11 に対応する曲率半径を有する曲り円筒状の鑄型中を溶融体 21 を注入してこの中を流動する溶融体 21 を冷却させることにより形成することができる。

**【0023】****【発明の効果】**

以上述べたところから明らかなように、本発明の高熱伝導複合材は、金属材料中に配向したカーボンナノチューブが互いに接触し合って繋がったカーボンナノチューブ連続体を有しているので、対象の部品に、連続体の一方の端が高温側に接続され他方の端が低温側に接続されるよう高熱伝導複合材を配設することにより、この部品の熱放散性を向上させることができる。

**【図面の簡単な説明】**

【図 1】 本発明の実施形態の高熱伝導率複合材よりなる棒状部材を示す略線斜視図である。

【図 2】 カーボンナノチューブ同士が接触する部分を示す略線側面図である。

【図 3】 本発明の実施形態の高熱伝導率複合材よりなる曲り棒状の部材を示す略線斜視図である。

【図 4】 高熱伝導率複合材よりなる部材を製造する方法を説明するフロー図である。

**【符号の説明】**

- 1 棒状部材
- 2 カーボンナノチューブ
- 3、13 カーボンナノチューブ連続体

4 アルミニウム母材

6 A、6 B 棒状部材の端面

1 1 曲り棒状部材

1 6 A、1 6 B 曲り棒状の部材の端面

2 1 溶融体

2 3 固化体

2 5 容器

2 6 バルブ

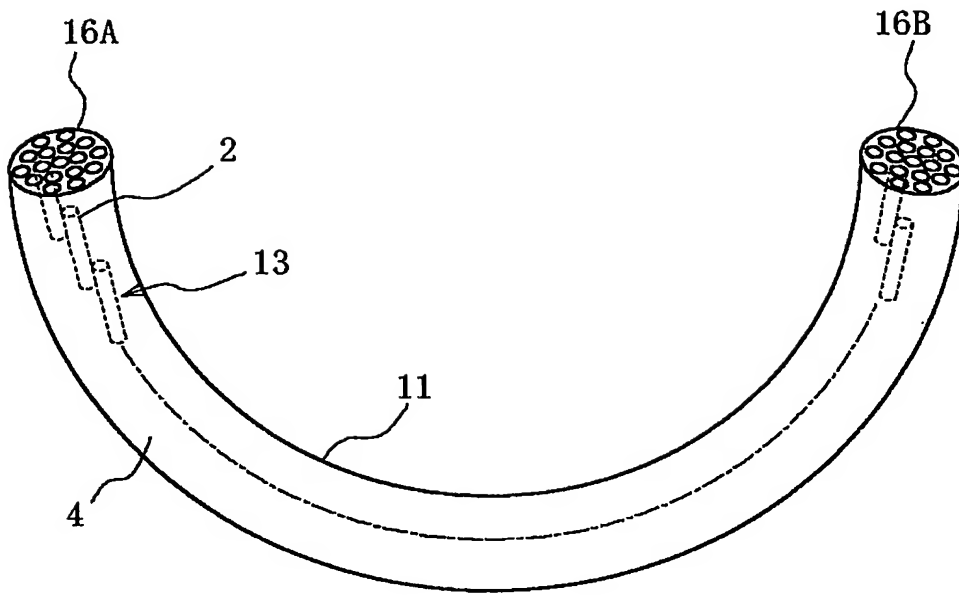
2 7 冷却ドラム

2 8 溝

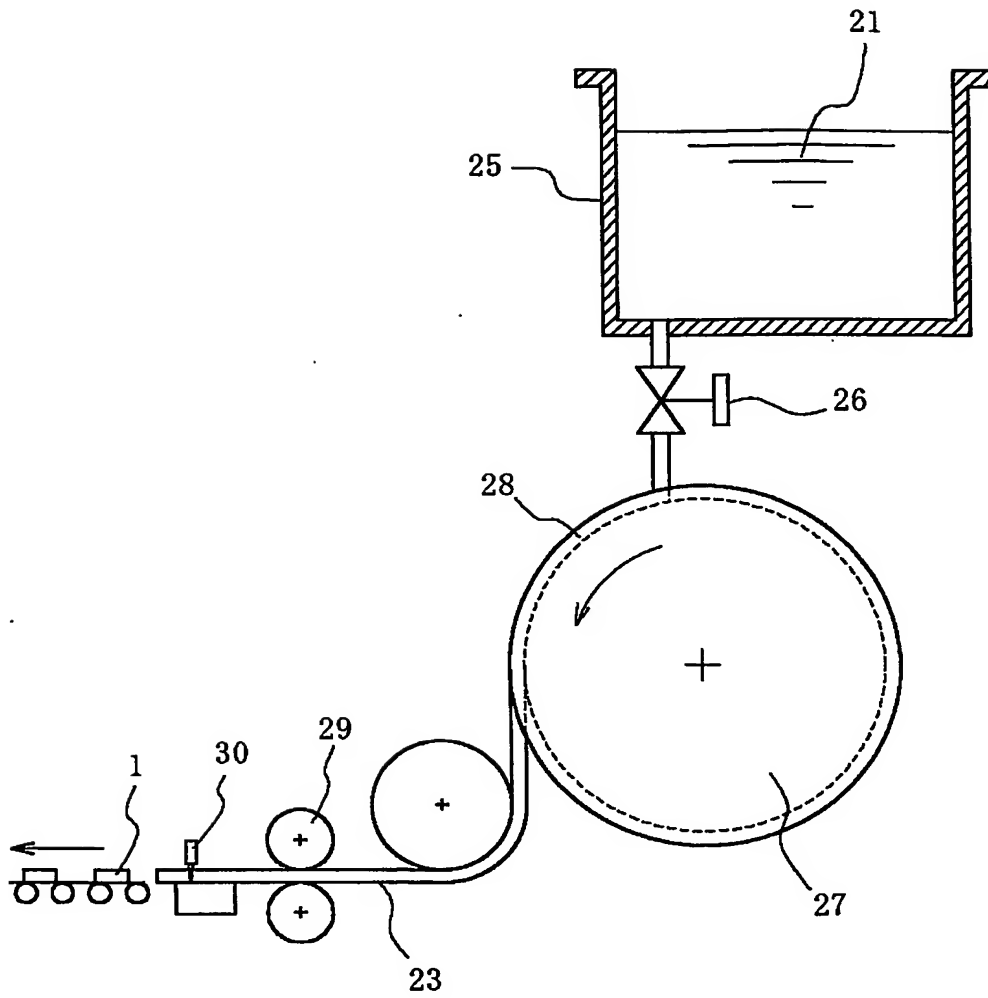
2 9 圧延ロール

3 1 カッタ

【図 3】



【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 従来よりも格段に熱伝導率の高い材料と製造方法を提供し、この高熱伝導複合材を配設した部品の熱放散性を向上させる。

【解決手段】 金属材料中に複数のカーボンナノチューブを配向させるとともに、配向方向に直交する所定の二平面で区切られる両端間の一端から他端までこれらのカーボンナノチューブが互いに接触し合って繋がったカーボンナノチューブ連続体を有してなる高熱伝導複合材を提供する。

【選択図】 図1

【書類名】 手続補正書  
【提出日】 平成15年 3月20日  
【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

## 【事件の表示】

【出願番号】 特願2002-295042

## 【補正をする者】

【識別番号】 000005278

【氏名又は名称】 株式会社 ブリヂストン

## 【代理人】

【識別番号】 100072051

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 杉村 興作

## 【手続補正 1】

【補正対象書類名】 特許願

【補正対象項目名】 発明者

【補正方法】 変更

## 【補正の内容】

## 【発明者】

【住所又は居所】 東京都小平市小川東町 3 - 1 - 1 株式会社 ブリヂス  
トン 技術センター内

【氏名】 菊池 正美

【その他】 願書作成中、誤って他の案件の発明者のデータを入力し  
たために生じたものです。

【ブルーフの要否】 要

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2002-295042
受付番号	50300459806
書類名	手続補正書
担当官	笹川 友子 9482
作成日	平成15年 5月28日

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

## 【補正をする者】

【識別番号】	000005278
【住所又は居所】	東京都中央区京橋1丁目10番1号
【氏名又は名称】	株式会社ブリヂストン

## 【代理人】

申請人	
【識別番号】	100072051
【住所又は居所】	東京都千代田区霞が関3-2-4 霞山ビル7階
【氏名又は名称】	杉村 興作

特願 2 0 0 2 - 2 9 5 0 4 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 5 2 7 8 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 7 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都中央区京橋 1 丁目 1 0 番 1 号

氏 名

株式会社ブリヂストン



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**